

Naturfaserverstärkte Kunststoffe – Auswirkung von Spritzgussparametern und Haftvermittler-Einsatz auf die mechanischen Eigenschaften

L. Steuernagel

Technische Universität Clausthal, Institut für Polymerwerkstoffe und Kunststofftechnik

Leif.Steuernagel@tu-clausthal.de

Abstract

Der Anteil faserverstärkter Kunststoffe in den entsprechenden industriellen Endanwendungen ist seit Jahren kontinuierlich gewachsen. Hierbei spielt das Leichtbaupotential der Kunststoffe, verbunden mit den aufgrund der Faserverstärkung erhöhten mechanischen Eigenschaften, eine entscheidende Rolle. Besonders durch die Verwendung von Naturfasern in Standardapplikationen wird hierbei ein großes Potential eröffnet, da die Naturfasern im Vergleich zu den, industriell in hohem Maße verwendeten Glasfasern eine geringere Dichte haben und vergleichbare spezifischen mechanischen Fasereigenschaften erhalten werden können. Dennoch beschränken sich aktuelle Anwendungen der naturfaserverstärkten thermoplastischen Verbundwerkstoffe bislang hauptsächlich auf Strukturen mit geringem Leistungspotential. Diesem Umstand liegt die Tatsache zugrunde, dass bislang nur niedrige mechanische Verbundeigenschaften erzielt werden können.

Bei Verwendung von Naturfasern in thermoplastischer Matrix muss die Kompatibilisierung zwischen der polaren Faser und den verwendeten, überwiegend unpolaren Matrices hergestellt werden. Dies wird durch Zugabe von Haftvermittler-Systemen realisiert, die mittels chemischer Reaktion die Faseroberfläche modifizieren und so die Kompatibilität der Materialien untereinander positiv beeinflussen. So wird beispielsweise im Polypropylen das Maleinsäureanhydrid-*gepfropfte* Polypropylen (MAPP) verwendet, welches einerseits eine chemische Bindung zwischen Faser und Haftvermittler generiert. Andererseits dient der Polypropylenstrang des MAPPs zur physikalischen Wechselwirkung mit der umgebenden Matrix.

Allerdings beeinflussen Prozesse, beispielsweise die Verarbeitung durch eine Düse, die Faser, da es aufgrund des Naturfaseraufbaus hierbei zu einem Aufspießen der Fasern kommen kann. Durch den geringeren Faserdurchmesser kann somit ein höheres As-

pektverhältnis erhalten werden, was wiederum zu besseren mechanischen Eigenschaften im Compound führen sollte. Allerdings wird durch den Auspleißvorgang gleichzeitig die Gesamtoberfläche der Faser erhöht, wobei ein Großteil dieser Oberfläche unmodifiziert vorliegt und somit keine Kraftübertragung gewährleisten kann.

Innerhalb dieses Beitrages wird die Auswirkung des Spritzgussprozesses auf das Aspektverhältnis der Verstärkungsfasern vor und nach einem Injektionsprozesses, der Effekt des Düsendurchmessers und die Verwendung einer neuen Prozessdüse beleuchtet. Ebenso werden die resultierenden mechanischen Eigenschaften der erhaltenen Verbundwerkstoffe betrachtet.

Weiterhin wird ein Ausblick auf die Verwendung neuer Haftvermittlungssysteme gegeben, deren Wirkweise im Gegensatz zum MAPP auf physikalischen bzw. reversiblen Wechselwirkungen zwischen den Fasern und der umgebenden Matrix beruht und die Effekte werden direkt mit einem MAPP–Haftvermittlungssystem verglichen. Es wird gezeigt, dass mit einem entsprechenden System mechanische Werte erhalten werden können, die diejenigen des MAPP-Systems um 20 % übersteigen.

1 Einleitung

Die Einarbeitung von Naturfaserbündeln in thermoplastische Matrices wird industriell über Extrusion bzw. die Herstellung von Bauteilen im Spritzgussprozess durchgeführt. Hierbei wird das Kunststoffgemisch mit Hilfe einer rotierenden Schnecke scherbeansprucht, was eine additive Energiezugabe und damit eine Viskositätserniedrigung der Thermoplastschmelze zur Folge hat. So wird beispielsweise die Schmelze im Extruder durch den, an den Mischprozess angepassten Schnecken Aufbau homogen mit eventuellen Zuschlagstoffen, z.B. Verstärkungsfasern, versetzt. Dennoch besteht gerade im Fall der Faserzugabe die Problematik, dass durch den Schereintrag die Fasern verändert werden können. Dies betrifft im Fall der synthetischen Fasern besonders die Faserlänge. Hierdurch ergibt sich bei gleichbleibendem Faserdurchmesser auch ein niedriges Aspektverhältnis der Verstärkungsfasern. Dies hat zur Folge, dass auch die resultierenden mechanischen Eigenschaften im Verbund verringert werden.

Derartige Untersuchungen sind im Bereich der Extrusion bereits literaturbekannt [1,2] und geben einen ersten Aufschluss über das Verhalten der Naturfasern in Verarbeitungsprozessen mit hohen Scherraten.

Bei Betrachtung des Spritzgussprozesses fällt auf, dass während des Einspritzens in das Werkzeug durch die Injektionsdüse eine erneute Scherenergie in das Material eingebracht wird, die weitaus höher ist als es durch den vorgelagerten Transportprozess der Fall ist. Beim Austritt aus der Düse erfährt die Thermoplastschmelze eine rapide Spannungsfreisetzung, wobei das Material expandiert. Dieser Effekt, der im Fall der Extrusion auch nutzbar gemacht werden kann, wird „Strangaufweitung“ genannt.

Für faserverstärkte Thermoplasten ist es in diesem Zusammenhang nachvollziehbar, dass die durch die Düse induzierte Spannung sowohl einerseits durch das Polymersystem – im Sinne der Relaxationsvorgänge für viskoelastische Materialien – als auch durch Vorgänge innerhalb der Faser, beispielsweise durch Faserbruch oder, im Fall von Naturfasern, durch –fibrillierung abgebaut werden können.

Das gleichzeitige Vorkommen beider Effekte kann einen erheblichen Einfluss auf das Aspektverhältnis von Naturfaser–verstärkten Thermoplasten und die resultierenden mechanischen Kennwerte haben, solange die Faserfibrillierung eher stattfindet als der Bruch der flexiblen Fasern.

Während industrielle Prozesse bei Materialwechsel in den Verarbeitungsparametern angepasst werden, erfahren die damit verbundenen Maschinen selten eine detaillierte Optimierung. Da besonders die Naturfaser als Verstärkungsmaterial in Thermoplasten in Bezug auf die anzustrebende Gewichtsreduktion der Struktur, ökologische Aspekte und andere Randbedingungen als Substitutionsmaterial für Glasfasern ein hohes Potential besitzt, muss auch an diesem Punkt eine Maschinenanpassung durchgeführt werden. Nur so kann das Leistungspotential der Naturfaser ausgenutzt werden.

2 Materialien und Methoden

Für die Bestimmung des Verarbeitungseinflusses auf die Naturfaser wurden zwei faserverstärkte Kunststoffsysteme betrachtet:

- FiberGranNF25 der Firma FIBERGRAN GMBH, Ostritz
- HP502 mit 40 Gew.-% Glasfaserverstärkung.

Beide Polypropylensysteme wurden mittels einer Spritzgussmaschine Allrounder 320 C–600/250 der Firma ARBURG GMBH & CO. KG, Lossburg, in Probekörper gemäß DIN EN ISO 527, Typ 1 A, überführt.

Zur Bestimmung des Düseneffektes wurden vier kurze Düsen (30 mm Länge) mit Durchmesser von 3 bis 6 mm verwendet. Zur Betrachtung der Düsenlänge wurde eine lange Düse (60 mm) zum Vergleich eingesetzt.

Vor der Bestimmung der mechanischen Eigenschaften der naturfaserverstärkten Materialproben wurden diese gemäß DIN EN ISO 291 bei 23 °C und 50 % relativer Feuchtigkeit konditioniert. Daran anschließend wurden Zug-, Biege- und Schlaguntersuchungen vorgenommen, wobei an der ZWICK Allzweckprüfmaschine eine 100 kN Kraftmessdose und ein 5 J-Hammer bei den Schlagtests Anwendung fand.

Parallel zu den mechanischen Untersuchungen wurden Faserlänge und -durchmesser bei den jeweiligen Materialien bestimmt. Diese Analytik erfolgte mittels QICPIC-Analysator, SYMPATEC GMBH, Clausthal-Zellerfeld. Die Faserisolierung wurde im Fall der Naturfaser nasschemisch unter Verwendung von Dekalin, bei der Glasfaser durch Verbrennung der Polymermatrix realisiert.

Auch wurden Untersuchungen mit neuen Haftvermittlersystemen durchgeführt. Hierzu wurden im Spritzguss Materialproben nach DIN EN ISO, Typ 1 BB, erhalten, deren Ausgangsmaterial am Knetter aus Polypropylen HP502 und einem Naturfaseranteil von 30 Gew.-% hergestellt wurde.

3 Ergebnisse

Die Zugfestigkeiten der beiden faserverstärkten Materialien in Abhängigkeit des Düsendurchmessers sind in *Abbildung 1* dargestellt. Dieser ist zu entnehmen, dass die Glasfaserverstärkung generell zu höheren Kennwerten führt als das für die Naturfaserverstärkung der Fall ist.

Allerdings wird auffällig, ebenso wie im Fall der anderen Kenndaten, dass die Düsendurchmesser keinen signifikanten Effekt auf die mechanischen Eigenschaften haben.

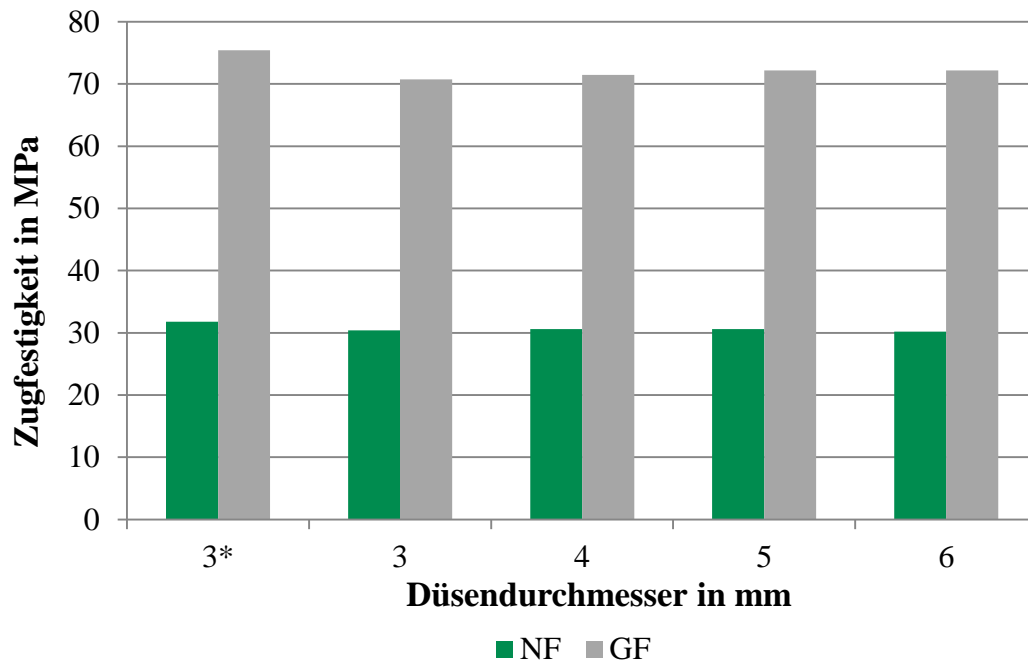


Abb. 1: Zugfestigkeiten faserverstärkter Polypropylensysteme in Abhängigkeit des Düsendurchmessers

Bei der Analytik der Verstärkungsfasern wurden Verteilungssummen bestimmt. Wie *Abbildung 2* für den Fall der Faserlänge entnommen werden kann, zeigen die Glasfasern (*Abbildung links*) keine signifikante Änderung in der Faserlänge. Bei den Naturfasern (*Abbildung rechts*) ist allerdings zu bemerken, dass die Faserkurven in Abhängigkeit des Düsendurchmessers unterschiedlich sind.

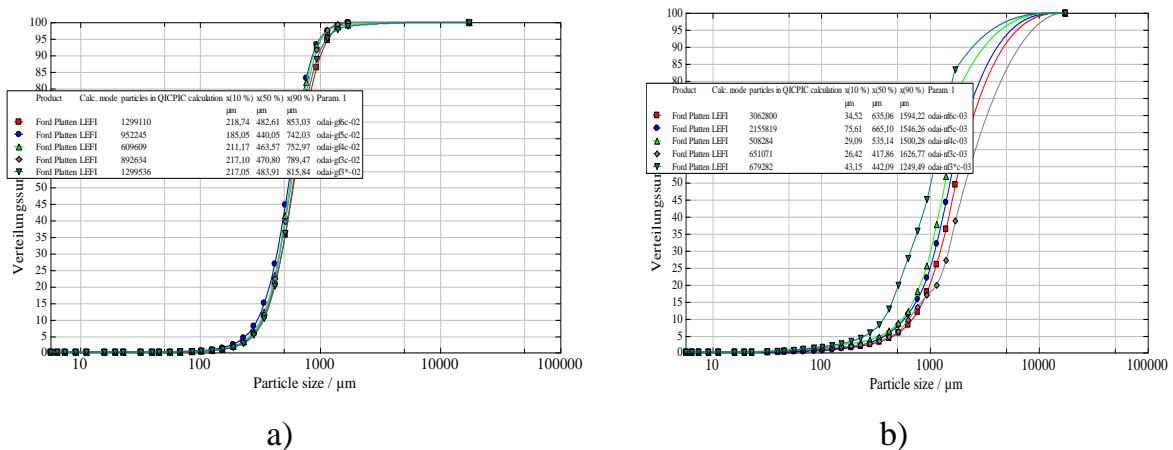


Abb. 2: Verteilungsfunktionen der Verstärkungsfasern: a) Glas-, b) Naturfaser

Selbige Betrachtungen wurden für den Faserdurchmesser angestellt. Auch hier zeigt die Glasfaserverstärkung keine Effekte, wohingegen die Werte für die Naturfasern bei

Verwendung der kurzen Düse auf etwa 75 % des Ausgangswertes fallen. Der Faserdurchmesser ist bei Verwendung der langen Düse signifikant höher als bei der kurzen Düse.

Die Berechnung des Aspektverhältnisses – aus Faserlänge und –durchmesser – ergibt somit die in *Abbildung 3* aufgezeigten Verhältnisse.

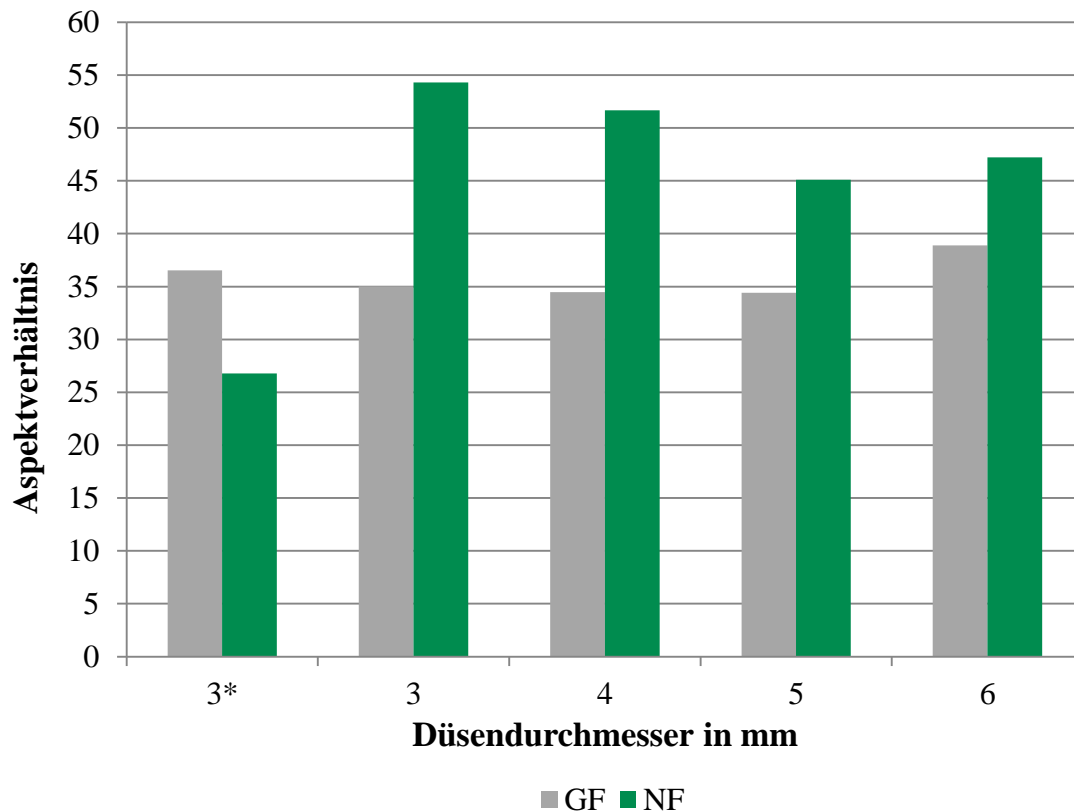


Abb. 3: Aspektverhältnisse der betrachteten faserverstärkten Compounds in Abhängigkeit des Düsendurchmessers

Obwohl die betrachteten Durchmesser der Injektionsdüse keinen signifikanten Einfluss auf die mechanischen Eigenschaften der faserverstärkten Compounds haben, ist dieser Parameter für die Faserform und das Verstärkungspotential von immenser Bedeutung. Wie der *Abbildung 3* entnommen werden kann, liegen die Aspektverhältnisse für die Glasfaserverstärkung in einem recht engen Bereich um 35.

Bei den Naturfasern hingegen ergibt die Verwendung einer langen, dünnen Düse das niedrigste Aspektverhältnis. Durch Modifikation hin zu einer kurzen Düse können Kennwerte in Höhe von über 50 erhalten werden. Eine Vergrößerung des Düsendurchmessers bei gleicher Düsenlänge ergibt niedrigere Aspektverhältnisse. Diese Zusammenhänge sind nachvollziehbar, da eine kurze, dünne Düse die meiste Spannung

auf das Material aufbringt. Da bei der kurzen Düse nur eine kleine Spannungsrelaxation stattfindet, wirkt eine große Restspannung auf die Schmelze des Verbundes, wenn diese sich am Düsenausgang aufgeweitet wird. Die hierbei freiwerdenden Spannungen werden durch die Faser aufgenommen und führen zum Fibrillieren der Naturfaser. Im Fall der langen Düse werden die Spannungen in der Düse sowohl vom Polymersystem als auch von der Faser durch Faserbruch abgebaut. Das führt zu entsprechend eingekürzten Fasern.

Aufgrund des hohen Aspektverhältnisses bei kurzer, dünner Düse müssten allerdings auch hohe mechanische Eigenschaften erhalten werden, die nicht detektiert werden konnten.

Grund hierfür ist erneut das Fibrillieren der Naturfaser. Da die Naturfasern mit einem Haftvermittler versehen wurden, liegen diese vor dem Passieren der Düse mit einer modifizierten Oberfläche vor, an der das MAPP gebunden ist. Durch das Fibrillieren nimmt die Oberfläche der Fasern zu. Nun liegen innerhalb der thermoplastischen Matrix neben Naturfasern, die den Haftvermittler enthalten, auch diejenigen vor, die unmodifiziert sind. Aufgrund der anliegenden niedrigen Temperaturen im Spritzgusswerkzeug, das sich hinter der Düsenöffnung befindet, ist eine Umsetzung der verbliebenen reaktiven Gruppen im MAPP mit der Naturfaser nicht möglich. Daher kann die neu generierte Oberfläche auch nicht durch den Haftvermittler modifiziert werden. Somit resultieren trotz des erhöhten Aspektverhältnisses aufgrund der nicht vorhandenen Faser-Matrix-Haftung keine erhöhten mechanischen Kennwerte.

Um dieser Problematik entgegen zu wirken, können zwei unterschiedliche Ansätze verfolgt werden.

Der erste Ansatz greift prozesstechnisch direkt an der Düse an und steuert über die Düsenlänge und –temperatur die Faserform und die Reaktivität des MAPP.

Der zweite Ansatz ist materialgetrieben, indem neue Haftvermittlungssysteme betrachtet werden, deren Wirkung auf reversible Bindungen beruht. Auch wäre hier sehr starke, rein physikalische Wechselwirkung vorstellbar.

In ersten Untersuchungen wurde evaluiert, ob recycliertes Polyvinylbutyral (PVB) als Haftvermittlungsreagenz Verwendung finden kann. Hierzu wurde das PVB sowohl mit als auch ohne MAPP verarbeitet.

Eine Übersicht der Materialmischungen und der erhaltenen Kenndaten gibt *Tabelle 1*.

Tab. 1: Materialzusammensetzung und mechanische Eigenschaften in Abhängigkeit vom Haftvermittler-System

PP in Gew.-%	NF in Gew.-%	MAPP in Gew.-%	PVB in Gew.-%	E-Modul in GPa	Zugfestigkeit in MPa	Biegefestigkeit in MPa
70	30			3,64	48,74	61,78
67	30	3		3,77	46,57	55,06
67	30		3	3,82	57,19	78,28

Eine Substitution des MAPP durch recycliertes PVB ergibt signifikant höhere Festigkeiten. Die Kombination aus 3 Gew.-% MAPP und 1 Gew.-% PVB ergab in Bezug auf das reine MAPP-haftvermittelte Materialsystem eine Erhöhung der Schlagzähigkeit von 10,29 kJ/m² auf 14,57 kJ/m².

4 Zusammenfassung

In den Untersuchungen konnte gezeigt werden, welchen Einfluss der Durchmesser der Injektionsdüse einer Spritzgussmaschine auf eine Naturfaserverstärkung im thermoplastischen System hat. Hierbei konnte festgestellt werden, dass kurze, dünne Düsen ein hohes Faser-Aspektverhältnis ergibt, dessen Effekt auf die mechanischen Eigenschaften des Verbundes derzeit nicht zum Tragen kommt.

Grund hierfür ist die für Naturfasern essentielle, synthetisch eingebrachte Faser-Matrix-Haftung gegenüber unpolaren Systemen. Durch die auftretenden Fasereffekte und die industriell genutzten Haftvermittler ist eine nachgeschaltete chemische Kopplung zwischen Faser und Haftvermittler nicht möglich und im Verbund tritt ein Gemisch aus Kompatibilität und Inkompatibilität auf.

Eine Möglichkeit zur Abschaffung dieser Problematik ist das Generieren neuer Haftvermittlungssysteme, die andere Haftungsmechanismen erzeugen. Im vorliegenden Fall konnte recycliertes PVB als potentieller Ersatz für MAPP evaluiert werden.

Literatur

- [1] Beaugrand, J.; Berzin, F.: Lignocellulosic fiber reinforced composites: Influence of compounding conditions on defibrization and mechanical properties. J. Appl. Polym. Sci. 128 (2013) S.1227
- [2] El-Sabbagh, A. M. M.; Steuernagel, L.; Meiners, D.; Ziegmann, G.: Effect of extruder elements on fiber dimensions and mechanical properties of bast natural fiber polypropylene composites. J. Appl. Polym. Sci. 131 (2014) 40435

Autorenanschrift

Dr. sc. nat. Leif Steuernagel

Technische Universität Clausthal

Institut für Polymerwerkstoffe und Kunststofftechnik

Agricolastraße 6

38678 Clausthal-Zellerfeld

Telefon: 05323-722947

Telefax: 05323-72-99-2947

E-Mail: Leif.Steuernagel@tu-clausthal.de